

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/002749

International filing date: 21 February 2005 (21.02.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-044530  
Filing date: 20 February 2004 (20.02.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 26 May 2005 (26.05.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

22.02.2005

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 4 年 2 月 2 0 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 0 4 4 5 3 0

パリ条約による外国への出願  
に用いる優先権の主張の基礎  
となる出願の国コードと出願  
番号

The country code and number  
of your priority application,  
to be used for filing abroad  
under the Paris Convention, is

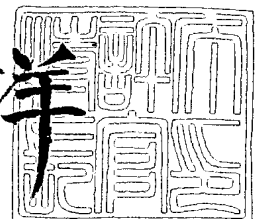
J P 2 0 0 4 - 0 4 4 5 3 0

出 願 人  
Applicant(s): 宇部興産株式会社

2 0 0 5 年 5 月 1 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川 洋



【書類名】 特許願  
【整理番号】 SOPA0401  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H01L 21/60  
C08L 63/00  
C08L 79/08  
C08L 83/10  
C08G 18/00

【発明者】  
【住所又は居所】 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 - 1 0 宇部興産株式会社 宇部  
ケミカル工場内  
【氏名】 林 浩二

【発明者】  
【住所又は居所】 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 - 1 0 宇部興産株式会社 宇部  
ケミカル工場内  
【氏名】 田中 芳樹

【発明者】  
【住所又は居所】 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 - 1 0 宇部興産株式会社 宇部  
ケミカル工場内  
【氏名】 平嶋 克俊

【発明者】  
【住所又は居所】 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 - 1 0 宇部興産株式会社 宇部  
ケミカル工場内  
【氏名】 高林 誠一郎

【特許出願人】  
【識別番号】 000000206  
【氏名又は名称】 宇部興産株式会社  
【代表者】 常見 和正

【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 012254  
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

(1) 表面に電気回路となる配線が形成された絶縁基板上に配線を部分的に覆うように硬化絶縁膜を形成する工程、次いで(2) 硬化絶縁膜で覆われていない配線部に異方性導電フィルム又は異方性導電ペーストによって電氣的接合部を形成する工程を含んでなる配線基板の実装方法において、

前記硬化絶縁膜を、(a) 芳香族テトラカルボン酸成分と、ジアミノポリシロキサン及び極性基を有する芳香族ジアミンを含んでなるジアミン成分とから得られる有機溶剤可溶性ポリイミドシロキサン100重量部、(b) エポキシ化合物及び／又はブロック多価イソシアネート化合物1～50重量部、(c) シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の基を持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤0.1～10重量部、および(d) 有機溶媒を含有してなるポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物を用いて形成することを特徴とする配線基板の実装方法。

**【請求項 2】**

前記ポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物のシリコン消泡剤が、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基、又はポリオキシアルキレン基のいずれかを持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤であることを特徴とする請求項1に記載の配線基板の実装方法。

**【請求項 3】**

前記ポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物のシリコン消泡剤が、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部としてポリオキシアルキレン基を持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤であることを特徴とする請求項1～2のいずれかに記載の配線基板の実装方法。

**【請求項 4】**

(a) 芳香族テトラカルボン酸成分と、ジアミノポリシロキサン及び極性基を有する芳香族ジアミンを含んでなるジアミン成分とから得られる有機溶剤可溶性ポリイミドシロキサン100重量部、(b) エポキシ化合物及び／又はブロック多価イソシアネート化合物1～50重量部、(c) シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の基を持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤0.1～10重量部、および(d) 有機溶媒を含有してなり、溶液組成物として泡抜け性が良好であり且つ硬化絶縁膜を形成したときに周辺部のハジキが抑制されることを特徴とするポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物。

**【請求項 5】**

シリコン消泡剤が、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基、又はポリオキシアルキレン基のいずれかを持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤であることを特徴とする前記請求項4に記載のポリイミドシロキサン組成物。

**【請求項 6】**

シリコン消泡剤が、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部としてポリオキシアルキレン基を持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤であることを特徴とする前記請求項4～5のいずれかに記載のポリイミドシロキサン組成物。

**【請求項 7】**

更に、微細な無機フィラーを含有してなる請求項4～6のいずれかに記載のポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物。

**【請求項 8】**

微細な無機フィラーが、アエロジルと、タルク、マイカ及び硫酸バリウムของいずれか少なくとも一つとからなる組合せ、特にアエロジルとタルクと硫酸バリウムとからなる組合せであることを特徴とする請求項7に記載のポリイミドシロキサン組成物。

**【請求項 9】**

更に、硬化触媒を含有してなる請求項 4 ～ 8 のいずれかに記載のポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物。

【請求項 1 0】

有機溶媒がグライム系溶媒であることを特徴とする請求項 4 ～ 9 のいずれかに記載のポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物。

【請求項 1 1】

請求項 4 ～ 1 0 のいずれかに記載のポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物を基材に塗布し、5 0℃～2 1 0℃にて加熱処理して得られる硬化絶縁膜。

【書類名】 明細書

【発明の名称】配線基板の実装方法、および、ポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物、硬化絶縁膜

【技術分野】

【 0 0 0 1 】

本発明は、表面に電気回路となる配線が形成された絶縁基板上に配線を部分的に覆うように絶縁膜を形成する工程、及び絶縁膜で覆われていない配線部に異方性導電フィルム（Anisotropic Conductive Film）又は異方性導電ペースト（Anisotropic Conductive Paste）によって電氣的接合部を形成する工程を含んでなる配線基板の実装方法に関する。特に、前記絶縁膜を、溶液組成物として泡抜け性が良好であり且つ基板上に塗布後加熱処理して得られた硬化絶縁膜の周辺部で接着不良の原因になるハジキが抑制されるポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物を用いて形成することを特徴とする配線基板の実装方法に関する。さらに、本発明は、有機溶剤可溶性ポリイミドシロキサンと、エポキシ化合物及び／又はブロックされた多価イソシアネート化合物とを含有してなる絶縁膜用の溶液組成物及びその硬化絶縁膜に関し、特に、溶液組成物として泡抜け性が良好であり且つ基材に塗布後加熱処理して得られた硬化絶縁膜の周辺部で接着不良の原因になるハジキが抑制されることを特徴とする絶縁膜用の溶液組成物、及びその硬化絶縁膜に関する。

### 【背景技術】

【 0 0 0 2 】

従来、電子部品の分野において、絶縁膜（保護膜、ソルダレジスト、層間絶縁層など）を形成するための溶液組成物として、有機溶剤可溶性のポリイミドシロキサンと、エポキシ化合物及び／又はブロックされた多価イソシアネート化合物とを含有してなる溶液組成物が用いられている。この溶液組成物は、フレキシブル配線基板などの基材上にスクリーン印刷などの方法で良好に塗布できるものであり、比較的低温で加熱処理することによって硬化絶縁膜を形成することができ、且つ得られた硬化絶縁膜は基材との密着性が優れ、ソリが発生し難く、耐熱性、耐溶剤性、耐薬品性、耐屈曲性、電気特性などが優れるものであり、特にTAB（Tape Automated Bonding）テープやフレキシブル配線基板などのフレキシブル性を有する配線基板を保護する硬化絶縁膜（保護膜）用として好適に使用されている。

【0 0 0 3】

特許文献 1 には、このような溶液組成物が必要に応じて消泡剤を含有してもよいこと、また消泡剤としてアクリル系消泡剤、アクリルビニルエーテル系消泡剤、フッ素系消泡剤、又はシリコン系消泡剤を用いてもよいことが記載されている。しかし、特許文献 1 には、シリコン系消泡剤を含有した場合の具体的な開示はなく、シリコン消泡剤を用いたときの消泡効果や、シリコン消泡剤を用いた際の課題やその解決手段等については何ら示されていなかった。

【 0 0 0 4 】

一方、電子部品や各種装置と配線基板とを実装するとき、しばしば、配線基板の表面の電気回路となる配線を例えばインナーリード部やアウターリード部を残して部分的に覆うように絶縁膜用溶液組成物を塗布し加熱処理して硬化絶縁膜を形成し、次いで硬化絶縁膜で覆われていない配線部にＡＣＦ又はＡＣＰを用いて電気的接合部が形成される。例えば、特許文献２には、フレキシブル配線基板にＡＣＦを用いて半導体素子を熱圧着で電気的接続部を形成する実装方法が、また特許文献３には、バンプで接続されたドライバＩＣを実装したフレキシブル配線基板の端部の配線部と液晶装置の操作電極とを異方性導電接着剤によって電気的に接続した液晶装置が記載されている。

【 0 0 0 5 】

ところで、ポリイミドシロキサン絶縁膜用溶液組成物に、シロキサン骨格の置換基がメチル基のジメチルポリシロキサン（ジメチルシリコーンオイル）消泡剤を添加すると、他の消泡剤に較べて著しく泡抜け性が良好（短時間で泡が抜ける）になり、スクリーン印刷を用いた塗布などによって硬化絶縁膜を形成する際の作業性を改善することができた。

## 【0006】

しかしながら、表面に電気回路となる配線が形成された絶縁基板上に配線を部分的に覆うように硬化絶縁膜を形成し、その後硬化絶縁膜で覆われていない配線部に異方性導電フィルム又は異方性導電ペーストによって電気的接合部を形成する配線基板の実装方法において、シロキサン骨格の置換基がメチル基のジメチルポリシロキサン（ジメチルシリコンオイル）消泡剤を含有したポリイミドシロキサン絶縁膜用溶液組成物を用いて硬化絶縁膜を形成すると、形成された硬化絶縁膜の周辺部にハジキが生じた。そして、前記硬化絶縁膜の周辺部で、基板の配線部と他の電子部品や各種装置の端子とを異方性導電フィルム又は異方性導電ペーストによって電気的に接合しようとする、ハジキのために十分な接着力が得られなくて、接着不良になり易いという問題が生じた。

## 【0007】

【特許文献1】特開2002-12664

【特許文献2】特開2003-209141

【特許文献3】特開2000-250064

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0008】

本発明の目的は、表面に電気回路となる配線が形成された絶縁基板上に配線を部分的に覆うように絶縁膜を形成する工程、次いで絶縁膜で覆われていない配線部に異方性導電フィルム又は異方性導電ペーストによって電気的接合部を形成する工程を含んでなる配線基板の実装方法において、前記絶縁膜を、溶液組成物として泡抜け性が良好であり且つ基板上に塗布後加熱処理して得られた硬化絶縁膜の周辺部で接着不良の原因になるハジキが抑制されるポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物を用いて形成することを特徴とする配線基板の実装方法を提供することである。

さらに、本発明の目的は、有機溶剤可溶性ポリイミドシロキサンとエポキシ化合物及び／又はブロックされた多価イソシアネート化合物とを含有してなる絶縁膜用の溶液組成物であって、溶液組成物として泡抜け性が良好であり且つ基材に塗布後加熱処理して得られた硬化絶縁膜の周辺部で接着不良の原因になるハジキが抑制されることを特徴とするポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物及びその硬化絶縁膜を提供することである。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0009】

本発明は、（１）表面に電気回路となる配線が形成された絶縁基板上に配線を部分的に覆うように硬化絶縁膜を形成する工程、次いで（２）硬化絶縁膜で覆われていない配線部に異方性導電フィルム又は異方性導電ペーストによって電気的接合部を形成する工程を含んでなる配線基板の実装方法において、前記硬化絶縁膜を、（a）芳香族テトラカルボン酸成分と、ジアミノポリシロキサン及び極性基を有する芳香族ジアミンを含んでなるジアミン成分とから得られる有機溶剤可溶性ポリイミドシロキサン100重量部、（b）エポキシ化合物及び／又はブロック多価イソシアネート化合物1～50重量部、（c）シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の基を持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤0.1～10重量部、および（d）有機溶媒を含有してなるポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物を用いて形成することを特徴とする配線基板の実装方法に関する。

## 【0010】

さらに、本発明の配線基板の実装方法は、好ましくは、前記ポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物のシリコン消泡剤が、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基、又はポリオキシアルキレン基のいずれかを持ったシリコン成分、特にシロキサン骨格の置換基の少なくとも一部としてポリオキシアルキレン基を持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤であることに関する。

## 【0011】

また、本発明は、(a) 芳香族テトラカルボン酸成分と、ジアミノポリシロキサン及び極性基を有する芳香族ジアミンを含んでなるジアミン成分とから得られる有機溶剤可溶性ポリイミドシロキサン100重量部、(b) エポキシ化合物及び／又はブロック多価イソシアネート化合物1～50重量部、(c) シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の基を持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤0.1～10重量部、および(d) 有機溶媒を含有してなり、溶液組成物として泡抜け性が良好であり且つ硬化絶縁膜を形成したときに周辺部のハジキが抑制されることを特徴とするポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物に関する。

#### 【0012】

さらに、本発明のポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物は、好ましくは、シリコン消泡剤が、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の、アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基、又はポリオキシアルキレン基のいずれかを持ったシリコン成分、特にシロキサン骨格の置換基の少なくとも一部としてポリオキシアルキレン基を持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤であること、更に、微細な無機フィラー、好ましくはアエロジルと、タルク、マイカ及び硫酸バリウムのいずれか少なくとも一つとからなる組合せ、特にアエロジルとタルクと硫酸バリウムとからなる組合せからなる微細な無機フィラーを含有すること、硬化触媒を含有すること、有機溶媒がグライム系溶媒であることに関する。

#### 【0013】

また、本発明は、前記のポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物を基材に塗布し、50℃～210℃にて加熱処理して得られる硬化絶縁膜に関する。

#### 【発明の効果】

#### 【0014】

本発明の配線基板の実装方法は、硬化絶縁膜を、溶液組成物として泡抜け性が良好であり且つ基板上に塗布後加熱処理して得られた硬化絶縁膜の周辺部で接着不良の原因になるハジキが抑制されるポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物を用いて形成するので、スクリーン印刷を用いた塗布などによって硬化絶縁膜を形成する際の作業性が著しく良好であり、且つ前記硬化絶縁膜の周辺部の配線に異方性導電フィルム又は異方性導電ペーストによって電氣的接合部を形成したときでも、その接合部は高い接着力を有して信頼性が高い電氣的接合部を得ることができる。

また、本発明のポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物は、フレキシブル配線基板などの基材上にスクリーン印刷などの方法で良好に塗布でき、比較的低温で加熱処理することによって硬化絶縁膜を形成することができ、且つ得られた硬化絶縁膜は基材との密着性が優れ、ソリが発生し難く、耐熱性、耐溶剤性、耐薬品性、耐屈曲性、電気特性が優れるのものであり、特に溶液組成物として泡抜け性が良好（短時間で泡が抜ける）であるからスクリーン印刷を用いた塗布などによって硬化絶縁膜を形成する際の作業性を著しく改善することができ且つ前記溶液組成物を基材に塗布後加熱処理して得られた硬化絶縁膜の周辺部で接着不良の原因になるハジキが抑制されて異方性導電フィルム又は異方性導電ペーストによっても信頼性が高い電氣的接合部を得ることができる。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0015】

本発明のポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物で用いられる有機溶剤可溶性ポリイミドシロキサンは、芳香族テトラカルボン酸成分と、ジアミノポリシロキサン及び極性基を有する芳香族ジアミンとを含んでなるジアミン成分とを、略等モル好ましくはジアミン成分1モルに対して芳香族テトラカルボン酸成分が1.0～1.2モル程度の割合で用いて有機溶媒中で反応して得ることができる。テトラカルボン酸成分が前記より多すぎると得られるポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物の印刷特性が低下するので好ましくない。

#### 【0016】

本発明のポリイミドシロキサンの芳香族テトラカルボン酸成分としては、具体的には、2, 3, 3', 4'-ビフェニルテトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテ



トラカルボン酸、2, 2', 3, 3'-ビフェニルテトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ジフェニルエーテルテトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ジフェニルスルホンテトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸、2, 2-ビス(3, 4-ベンゼンジカルボン酸)ヘキサフルオロプロパン、ピロメリット酸、1, 4-ビス(3, 4-ベンゼンジカルボン酸)ベンゼン、2, 2-ビス[4-(3, 4-フェノキシカルボン酸)フェニル]プロパン、2, 3, 6, 7-ナフタレンテトラカルボン酸、1, 2, 5, 6-ナフタレンテトラカルボン酸、1, 2, 4, 5-ナフタレンテトラカルボン酸、1, 4, 5, 8-ナフタレンテトラカルボン酸、1, 1-ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)エタンなどの芳香族テトラカルボン酸、又は、それらの酸二無水物や低級アルコールのエステル化物を好適に挙げることができる。これらのなかでも特に、2, 3, 3', 4'-ビフェニルテトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ジフェニルエーテルテトラカルボン酸、及び2, 2', 3, 3'-ビフェニルテトラカルボン酸、又は、それらの酸二無水物や低級アルコールのエステル化物は、ポリイミドシロキサンとしたときの有機溶媒に対する溶解性が優れているので好適である。

本発明において、ポリイミドシロキサンのテトラカルボン酸成分が、前記例示の芳香族テトラカルボン酸成分を80モル%以上特に85%~100%含有することが好ましい。

#### 【0017】

本発明におけるポリイミドシロキサンの芳香族テトラカルボン酸成分は、ジアミンと反応させることが容易な芳香族テトラカルボン酸二無水物を用いることが好ましい。また、芳香族テトラカルボン酸二無水物の使用量がジアミン成分に対して1.05倍モル以上で未反応無水環が残存するような場合には、そのままでよいが、エステル化剤で開環ハーフエステル化してもよい。

#### 【0018】

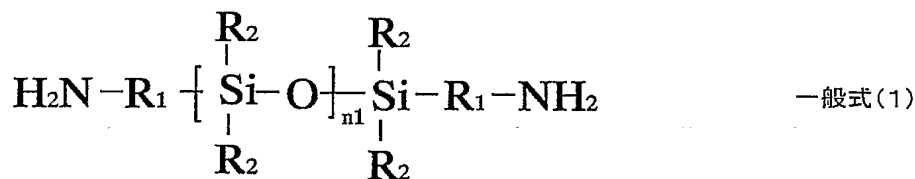
本発明のポリイミドシロキサンに用いられるジアミン成分は、ジアミノポリシロキサン及び極性基を有する芳香族ジアミン以外のジアミンを含んでもよく、好ましくはジアミノポリシロキサン30~95モル%特に50~95モル%更に60~95モル%、極性基を有する芳香族ジアミン0.5~40モル%、及び、前記ジアミノポリシロキサン及び前記極性基を有する芳香族ジアミン以外のジアミン0~69.5モル%(通常、0~30モル%)の割合で使用される。いずれかの成分が多すぎたり、少なすぎたりしてこれらの範囲をはずれると得られるポリイミドシロキサンの有機溶媒に対する溶解性が低下したり、他の有機化合物との相溶性が悪くなったり、得られる絶縁膜の曲率半径が小さくなってソリが発生しやすくなったり、耐屈曲性、基材との密着性、又は、耐熱性が低下することがある。

#### 【0019】

本発明におけるポリイミドシロキサンのジアミン成分を構成するジアミノポリシロキサンは、下記一般式(1)で示される化合物が好適である。特に、前記式中 $R_1$ は独立に炭素数1~6の2価の炭化水素基又はフェニレン基、特にプロピレン基であり、前記式中 $R_2$ は独立に炭素数1~5のアルキル基又はフェニル基であり、前記式中 $n_1$ は3~50、特に3~20である。 $n_1$ が3未満では得られる絶縁膜の耐屈曲性が悪くなるので好ましくなく、又 $n_1$ が50を超えるとテトラカルボン酸成分との反応性が低下して得られるポリイミドシロキサンの分子量が低くなったり、組成物における他の有機成分との相溶性が悪くなったり、得られる絶縁膜の耐溶剤性が低くなったりするので前記程度のものが好適である。尚、ジアミノポリシロキサンが2種以上の混合物からなる場合は、 $n_1$ はアミノ当量から計算される。

#### 【0020】

## 【化1】



(式中、 $\text{R}_1$  は2価の炭化水素基又は芳香族基を示し、 $\text{R}_2$  は独立に1価の炭素水素基又は芳香族基を示し、 $n1$  は3～50の整数を示す。)

## 【0021】

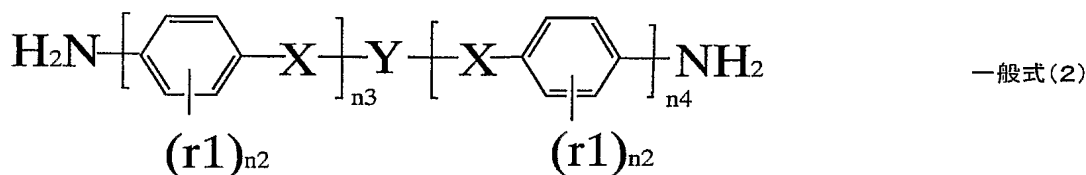
前記ジアミノポリシロキサン of 具体的化合物の例としては、 $\alpha$ ， $\omega$ -ビス(2-アミノエチル)ポリジメチルシロキサン、 $\alpha$ ， $\omega$ -ビス(3-アミノプロピル)ポリジメチルシロキサン、 $\alpha$ ， $\omega$ -ビス(4-アミノフェニル)ポリジメチルシロキサン、 $\alpha$ ， $\omega$ -ビス(4-アミノ-3-メチルフェニル)ポリジメチルシロキサン、 $\alpha$ ， $\omega$ -ビス(3-アミノプロピル)ポリジフェニルシロキサン、 $\alpha$ ， $\omega$ -ビス(4-アミノブチル)ポリジメチルシロキサンなどが挙げられる。

## 【0022】

本発明におけるポリイミドシロキサンのジアミン成分を構成する極性基を有する芳香族ジアミンは、分子中にイソシアネート基又はエポキシ基との反応性を有する極性基を有する芳香族ジアミンであり、好ましくは下記一般式(2)で示されるジアミンである。

## 【0023】

## 【化2】



(式中、X及びYは、それぞれ独立に直接結合、 $\text{CH}_2$ 、 $\text{C}(\text{CH}_3)_2$ 、 $\text{C}(\text{CF}_3)_2$ 、O、ベンゼン環、 $\text{SO}_2$ を示し、r1は $\text{COOH}$ 又は $\text{OH}$ を示し、 $n2$ は1又は2であり、 $n3$ 、 $n4$ はそれぞれ独立に0、1又は2、好ましくは0又は1であり、 $n3$ 及び $n4$ の少なくとも一方は1又は2である。)

## 【0024】

前記一般式(2)で示されるジアミン化合物としては、2，4-ジアミノフェノールなどのジアミノフェノール化合物類、3，3'-ジアミノ-4，4'-ジヒドロキシビフェニル、4，4'-ジアミノ-3，3'-ジヒドロキシビフェニル、4，4'-ジアミノ-2，2'-ジヒドロキシビフェニル、4，4'-ジアミノ-2，2'，5，5'-テトラヒドロキシビフェニルなどのヒドロキシビフェニル化合物類、3，3'-ジアミノ-4，4'-ジヒドロキシジフェニルメタン、4，4'-ジアミノ-3，3'-ジヒドロキシジフェニルメタン、4，4'-ジアミノ-2，2'-ジヒドロキシジフェニルメタン、2，2-ビス[3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル]プロパン、2，2-ビス[4-アミノ-3-ヒドロキシフェニル]プロパン、2，2-ビス[3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル]ヘキサフルオロプロパン、4，4'-ジアミノ-2，2'，5，5'-テトラヒドロキシジフェニルメタンなどのヒドロキシジフェニルアルカン化合物類、3，3'-ジアミノ-4，4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、4，4'-ジアミノ-3，3'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、4，4'-ジアミノ-2，2'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、4，4'-ジアミノ-2，2'，5，5'-テトラヒドロキシジフェニルエーテルなどのヒドロキシジフェニルエーテル化合物類、3，3'-ジアミノ-4，4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4，4'-ジアミノ-3，3'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4，4'-ジアミノ-2，2'-ジ

ハイドロキシジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノ-2, 2', 5, 5'-テトラハイドロキシジフェニルスルホンなどのヒドロキシジフェニルスルホン化合物類、2, 2'-ビス〔4-(4-アミノ-3-ハイドロキシフェノキシ)フェニル〕プロパンなどのビス(ハイドロキシフェニキシフェニル)アルカン化合物類、4, 4'-ビス(4-アミノ-3-ハイドロキシフェノキシ)ビフェニルなどのビス(ハイドロキシフェノキシ)ビフェニル化合物類、2, 2'-ビス〔4-(4-アミノ-3-ハイドロキシフェノキシ)フェニル〕スルホンなどのビス(ハイドロキシフェニキシフェニル)スルホン化合物類などのOH基を有するジアミン化合物を挙げることができる。

#### 【0025】

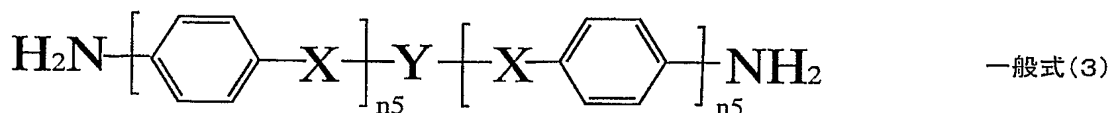
更に、前記の一般式(2)で示されるジアミン化合物としては、3, 5-ジアミノ安息香酸、2, 4-ジアミノ安息香酸などのベンゼンカルボン酸類、3, 3'-ジアミノ-4, 4'-ジカルボキシビフェニル、4, 4'-ジアミノ-3, 3'-ジカルボキシビフェニル、4, 4'-ジアミノ-2, 2'-ジカルボキシビフェニル、4, 4'-ジアミノ-2, 2', 5, 5'-テトラカルボキシビフェニルなどのカルボキシビフェニル化合物類、3, 3'-ジアミノ-4, 4'-ジカルボキシジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノ-3, 3'-ジカルボキシジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノ-2, 2'-ジカルボキシジフェニルメタン、2, 2'-ビス〔3-アミノ-4-カルボキシフェニル〕プロパン、2, 2'-ビス〔4-アミノ-3-カルボキシフェニル〕プロパン、2, 2'-ビス〔3-アミノ-4-カルボキシフェニル〕ヘキサフルオロプロパン、4, 4'-ジアミノ-2, 2', 5, 5'-テトラカルボキシビフェニルなどのカルボキシジフェニルアルカン化合物類、3, 3'-ジアミノ-4, 4'-ジカルボキシジフェニルエーテル、4, 4'-ジアミノ-3, 3'-ジカルボキシジフェニルエーテル、4, 4'-ジアミノ-2, 2'-ジカルボキシジフェニルエーテル、4, 4'-ジアミノ-2, 2', 5, 5'-テトラカルボキシジフェニルエーテルなどのカルボキシジフェニルエーテル化合物類、3, 3'-ジアミノ-4, 4'-ジカルボキシジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノ-3, 3'-ジカルボキシジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノ-2, 2', 5, 5'-テトラカルボキシジフェニルスルホンなどのカルボキシジフェニルスルホン化合物類、2, 2'-ビス〔4-(4-アミノ-3-カルボキシフェノキシ)フェニル〕プロパンなどのビス(カルボキシフェノキシフェニル)アルカン化合物類、4, 4'-ビス(4-アミノ-3-カルボキシフェノキシ)ビフェニルなどのビス(カルボキシフェノキシ)ビフェニル化合物類、2, 2'-ビス〔4-(4-アミノ-3-カルボキシフェノキシ)フェニル〕スルホンなどのビス(カルボキシフェノキシフェニル)スルホン化合物類などのCOOH基を有するジアミン化合物を挙げることができる。

#### 【0026】

本発明におけるポリイミドシロキサンジアミン成分を構成する前記ジアミノポリシロキサン及び前記極性基を有する芳香族ジアミン以外のジアミンは、特に限定されるものではないが、下記一般式(3)で示される芳香族ジアミンが好適である。

#### 【0027】

##### 【化3】



(式中、X及びYは、それぞれ独立に直接結合、CH<sub>2</sub>、C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、C(CF<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、O、ベンゼン環、SO<sub>2</sub>を示し、n5は1又は2である。)

#### 【0028】

前記一般式(3)で示される芳香族ジアミンは、具体的には、1, 4-ジアミノベンゼン、1, 3-ジアミノベンゼン、2, 4-ジアミノトルエン、1, 4-ジアミノ-2, 5-ジハロゲノベンゼンなどのベンゼン1個を含むジアミン類、ビス(4-アミノフェニル

) エーテル、ビス (3-アミノフェニル) エーテル、ビス (4-アミノフェニル) スルホン、ビス (3-アミノフェニル) スルホン、ビス (4-アミノフェニル) メタン、ビス (3-アミノフェニル) メタン、ビス (4-アミノフェニル) スルフィド、ビス (3-アミノフェニル) スルフィド、2, 2-ビス (4-アミノフェニル) プロパン、2, 2-ビス (3-アミノフェニル) プロパン、2, 2-ビス (4-アミノフェニル) ヘキサフルオロプロパン、o-ジアニシジン、o-トリジン、トリジンスルホン酸類などのベンゼン 2 個を含むジアミン類、1, 4-ビス (4-アミノフェノキシ) ベンゼン、1, 4-ビス (3-アミノフェノキシ) ベンゼン、1, 4-ビス (4-アミノフェニル) ベンゼン、1, 4-ビス (3-アミノフェニル) ベンゼン、 $\alpha$ ,  $\alpha'$ -ビス (4-アミノフェニル) -1, 4-ジイソプロピルベンゼン、 $\alpha$ ,  $\alpha'$ -ビス (4-アミノフェニル) -1, 3-ジイソプロピルベンゼンなどのベンゼン 3 個を含むジアミン類、2, 2-ビス [4- (4-アミノフェノキシ) フェニル] プロパン、2, 2-ビス [4- (4-アミノフェノキシ) フェニル] ヘキサフルオロプロパン、2, 2-ビス [4- (4-アミノフェノキシ) フェニル] スルホン、4, 4'- (4-アミノフェノキシ) ビフェニル、9, 9-ビス (4-アミノフェニル) フルオレン、5, 10-ビス (4-アミノフェニル) アントラセンなどのベンゼン 4 個以上を含むジアミン類などのジアミン化合物が挙げられる。

また、ヘキサメチレンジアミン、ジアミノドデカンなど脂肪族ジアミン化合物を上記ジアミンと共に使用することができる。

#### 【0029】

本発明におけるポリイミドシロキサンは、特に限定するものではないが、例えば次の方法で得ることができる。

a) テトラカルボン酸成分とジアミン成分とを略等モル使用し、有機極性溶媒中で連続的に 15~250℃で重合及びイミド化させてポリイミドシロキサンを得る方法。

b) テトラカルボン酸成分とジアミン成分とをそれぞれ分けて、まず過剰量のテトラカルボン酸成分とジアミン成分 (例えばジアミノポリシロキサン) とを有機極性溶媒中 15~250℃で重合及びイミド化させて平均重合度 1~10 程度の末端に酸無水物基 (又は、酸、そのエステル化物) を有するイミドシロキサンオリゴマーを調製し、別にテトラカルボン酸成分と過剰量のジアミン成分とを有機極性溶媒中 15~250℃で重合及びイミド化させて平均重合度 1~10 程度の末端にアミノ基を有するイミドオリゴマーを調製し、次いでこの両者を酸成分とジアミン成分とが略等モルになるように混合して 15~60℃で反応させて、さらに 130~250℃に昇温して反応させてポリイミドシロキサンを得る方法。

c) テトラカルボン酸成分とジアミン成分とを略等モル使用し、有機極性溶媒中でまず 20~80℃で重合させてポリアミック酸を得た後に、そのポリアミック酸をイミド化してポリイミドシロキサンを得る方法。

#### 【0030】

上述の方法でポリイミドシロキサンを得る際に使用される有機極性溶媒としては、含窒素系溶媒、例えば N, N-ジメチルアセトアミド、N, N-ジエチルアセトアミド、N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジエチルホルムアミド、N-メチル-2-ピロリドン、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、N-メチルカプロラクタムなど、硫黄原子を含有する溶媒、例えばジメチルスルホキシド、ジエチルスルホキシド、ジメチルスルホン、ジエチルスルホン、ヘキサメチルスルホルアミドなど、フェノール系溶媒、例えばクレゾール、フェノール、キシレノールなど、ジグライム系溶媒、例えばジエチレングリコールジメチルエーテル (ジグライム)、トリエチレングリコールジメチルエーテル (トリグライム)、テトラグライムなど、酸素原子を分子内に有する溶媒、例えばアセトン、メタノール、エタノール、エチレングリコール、ジオキサン、テトラヒドロフランなど、その他ピリジン、テトラメチル尿素などを挙げることができる。また必要に応じてベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素系溶媒やソルベントナフサ、ベンゾニトリルなど他の有機溶媒を併用してもよい。

#### 【0031】

本発明において、ポリイミドシロキサンは、前記 a) ~ b) などいずれの方法で得られたものを使用してもよいが、有機溶媒に少なくとも 3 重量%以上、好ましくは 5 ~ 60 重量%、特に 5 ~ 50 % 程度の高濃度で溶解させることができるもので、25℃の溶液粘度 (E 型回転粘度計) が 1 ~ 10000 ポイズ、特に 1 ~ 100 ポイズであることが好ましい。

本発明において、ポリイミドシロキサンは高分子量のものが好ましく更にイミド化率が高いものが好ましい。分子量の目安としての対数粘度 (測定濃度: 0.5 g/100 ミリリットル、溶媒: N-メチル-2-ピロリドン、測定温度: 30℃) は、0.15 以上、特に 0.16 ~ 2 のものが硬化物の強度、伸度などの機械的物性の点から好ましい。また、赤外吸収スペクトルから求められるイミド化率は、90%以上特に 95%以上更に実質的に 100%のものが好ましい。

#### 【0032】

本発明の絶縁膜用組成物を構成するエポキシ化合物としては、エポキシ当量が 100 ~ 4000 程度であって、分子量が 300 ~ 10000 程度である液状又は固体状のエポキシ樹脂が好ましい。例えば、ビスフェノール A 型やビスフェノール F 型のエポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン社製: エピコート 806、エピコート 807、エピコート 825、エピコート 828、エピコート 1001、エピコート 1002、エピコート 1003、エピコート 1004、エピコート 1055、エピコート 1004 AF、エピコート 1007、エピコート 1009、エピコート 1010、)、3 官能以上のエポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン製: エピコート 152、エピコート 154、エピコート 180 シリーズ、エピコート 157 シリーズ、エピコート 1032 シリーズ、チバガイギー製: MT0163 など)、宇部興産株式会社製のハイカー E TBN1300×40、及び、ナガセケムテックス株式会社製のデナレックス R-45 EPT などを挙げることができる。

#### 【0033】

本発明の絶縁膜用組成物を構成する多価イソシアネート化合物としては、1 分子中にイソシアネート基を 2 個以上有するものであればどのようなものでもよい。このような多価イソシアネート化合物として、脂肪族、脂環族または芳香族のジイソシアネート等があり、例えば 1, 4-テトラメチレンジイソシアネート、1, 5-ペンタメチレンジイソシアネート、1, 6-ヘキサメチレンジイソシアネート、2, 2, 4-トリメチル-1, 6-ヘキサメチレンジイソシアネート、リジンジイソシアネート、3-イソシアネートメチル-3, 5, 5-トリメチルシクロヘキシルイソシアネート (イソホロンジイソシアネート)、1, 3-ビス (イソシアネートメチル) -シクロヘキサン、4, 4'-ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、トリレンジイソシアネート、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、1, 5-ナフタレンジイソシアネート、トリジンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート等を挙げることができる。

更に、多価イソシアネート化合物として、脂肪族、脂環族または芳香族の多価イソシアネートから誘導されるもの、例えばイソシアヌレート変性多価イソシアネート、ビュレット変性多価イソシアネート、ウレタン変性多価イソシアネート等であってもよい。

#### 【0034】

また、本発明に用いる多価イソシアネートは、多価イソシアネートのイソシアネート基をブロック化剤でブロックしたブロック多価イソシアネートが好適に使用される。

前記のブロック化剤としては例えば、アルコール系、フェノール系、活性メチレン系、メルカプタン系、酸アミド系、酸イミド系、イミダゾール系、尿素系、オキシム系、アミン系、イミド系化合物、ピリジン系化合物等があり、これらを単独あるいは、混合して使用してもよい。具体的なブロック化剤としては、アルコール系としてメタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、2-エチルヘキサノール、メチルセロソルブ、ブチルセロソルブ、メチルカルピトール、ベンジルアルコール、シクロヘキサノール等、フェノール系として、フェノール、クレゾール、エチルフェノール、ブチルフェノール、ノニルフェノール、ジノニルフェノール、スチレン化フェノール、ヒドロキシ安息香酸エステル等、活性メチレン系として、マロン酸ジメチル、マロン酸ジエチル、アセト酢酸メチル、

アセト酢酸エチル、アセチルアセトン等、メルカプタン系として、ブチルメルカプタン、ドデシルメルカプタン等、酸アミド系として、アセトアニリド、酢酸アミド、 $\epsilon$ -カプロラクタム、 $\delta$ -バレロラクタム、 $\gamma$ -ブチロラクタム等、酸イミド系として、コハク酸イミド、マレイン酸イミド、イミダゾール系として、イミダゾール、2-メチルイミダゾール、尿素系として、尿素、チオ尿素、エチレン尿素等、オキシム系として、ホルムアルドオキシム、アセトアルドオキシム、アセトオキシム、メチルエチルケトオキシム、シクロヘキサノンオキシム等、アミン系として、ジフェニルアミン、アニリン、カルバゾール等、イミン系として、エチレンイミン、ポリエチレンイミン等、重亜硫酸塩として、重亜硫酸ソーダ等、ピリジン系として、2-ヒドロキシピリジン、2-ヒドロキシキノリン等が挙げられる。

#### 【0035】

本発明に用いるブロック多価イソシアネートとしては、特に、大日本インキ化学工業株式会社製のバーノックD-500（トリレンジイソシアネートブロック化体）、D-550（1, 6-ヘキサメチレンジイソシアネートブロック化体）、三井武田ケミカル株式会社製のタケネートタケネートB-830（トリレンジイソシアネートブロック化体）、B-815N（4, 4'-メチレンビス（シクロヘキシルイソシアネート）ブロック化体）、B-842N（1, 3-ビス（イソシアネートメチル）シクロヘキサンプロック化体）、B-846N（1, 3-ビス（イソシアネートメチル）シクロヘキサンプロック化体）、B-874N（イソホロンレンジイソシアネートブロック化体）、B-882N（1, 6-ヘキサメチレンジイソシアネートブロック化体）、旭化成株式会社製のデュラネートMF-B60X（1, 6-ヘキサメチレンジイソシアネートブロック化体）、デュラネートMF-K60X（1, 6-ヘキサメチレンジイソシアネートブロック化体）、第一工業製薬社製のエラストロンBN-P17（4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネートブロック化体）、エラストロンBN-04、エラストロンBN-08、エラストロンBN-44、エラストロンBN-45（以上、ウレタン変成多価イソシアネートブロック化体1分子当たり3~5官能、いずれも水エマルジョン品で乾燥単離後使用可能）などを好適に使用することができる。

#### 【0036】

本発明において、エポキシ化合物及び／又はブロック多価イソシアネート化合物の使用量は、ポリイミドシロキサン100重量部に対して1~50重量部好ましくは1~40重量部特に2~40重量部である。使用量が前記範囲よりも多すぎると相分離を生じ易くなったり硬化後の絶縁膜の基材や封止材料に対する接着性が低下したり耐屈曲性や耐熱性が低くなったりし、少なすぎると硬化後の絶縁膜の耐熱性、耐薬品性が悪くなるので前記範囲が好ましい。

さらに詳しく述べると、本発明においては、エポキシ化合物のみか、又はエポキシ化合物とブロック多価イソシアネート化合物との組合せが好適に使用される。エポキシ化合物とブロック多価イソシアネート化合物との組合せでは、ポリイミドシロキサン100重量部に対してエポキシ化合物を0.5~30重量部及びブロック多価イソシアネート化合物を2~40重量部の組合せで使用するのが、130℃程度以下の低温で硬化することが容易で且つ封止材料との密着性が良好であるので好適である。

#### 【0037】

ポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物において、泡抜け性を改善するにはシロキサン骨格を有する成分からなるシリコーン消泡剤が有効である。他の種類の消泡剤では必ずしも効果的な泡抜け性を得ることができない。そもそも、ポリイミドシロキサンはそのシロキサン骨格のために少なからず表面エネルギーが低く凝集力が弱いものである。これに作用して破泡させるには、ポリイミドシロキサンとの親和性があり且つ表面エネルギーや凝集力がポリイミドシロキサンに較べて更に低いものでなければ消泡効果を発揮できない。シリコーン消泡剤はポリイミドシロキサンとの親和性があり且つ表面エネルギーや凝集力がポリイミドシロキサンに較べて更に低いので消泡剤として有効であり、なかでもジメチルポリシロキサン（ジメチルシリコーンオイル）は消泡剤として極めて効果的である。

このため、ジメチルポリシロキサンを消泡剤として加えると、泡抜け性が良好になって、ポリイミドシロキサン組成物を製造する際やポリイミドシロキサンをスクリーン印刷して塗布膜を形成する際に作業性が著しく改善できる。

しかしながら、ジメチルポリシロキサンを消泡剤として加えると、ポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物から得られる硬化絶縁膜は、その表面だけでなく、その周辺部においてもハジキを生じ、例えば硬化絶縁膜の周辺部で異方性伝導フィルムによって電氣的接合部を形成すると、十分な接着力が得られないで信頼性が確保できないという問題が生じた。

#### 【0038】

本発明のポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物の消泡剤は、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の置換基を持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤である。シロキサン骨格の置換基とは、O原子とSi原子が交互に結合して形成されたシロキサン骨格のSi原子に結合している基のことである。

本発明において、前記炭素数が2以上の置換基としては、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、オクタデシル基などのアルキル基、ビニル基、アリル基などのアルケニル基、シクロヘキシル基などのシクロアルキル基、フェニル基、トリル基などのアリール基、ベンジル基、フェネチル基などのアラルキル基、及びポリオキシアルキレン基を、特に好ましくはポリオキシアルキレン基を好適に挙げることができる。シロキサン骨格の置換基の一部としてポリオキシアルキレン基を有するシリコンは、通常ポリオキシアルキレン変性シリコンオイル又はポリエーテル変性シリコンとして市販され、またSiH基を有するオルガノポリシロキサンに分子末端に不飽和基を有するポリオキシアルキレン化合物を白金触媒の存在下に付加反応して容易に得られる。ポリオキシアルキレン基としては、通常はエチレンオキシ基、プロピレンオキシ基、ブチレンオキシ基などのホモポリマーまたはコポリマーが用いられる。

#### 【0039】

本発明の、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の置換基を持ったシリコン成分において、シロキサン骨格の置換基のうち炭素数が2以上の置換基の割合は、そのシロキサン骨格の置換基中の3%以上が好ましく、通常はシロキサン骨格の置換基中の5~100%であり、残りの置換基はメチル基であることが好ましい。そして、シロキサン骨格の置換基が、炭素数が2以上のアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基のときには、シロキサン骨格の置換基中の割合は10~100%特に50~100%で、残りがメチル基であることが好ましく、シロキサン骨格の置換基がポリオキシアルキレン基のときには、そのシロキサン骨格の置換基中の割合は5~80%特に5~50%であり、残りがメチル基であることが好ましい。

シロキサン骨格の置換基がメチル基からなるジメチルポリシロキサンは消泡効果が特に優れているがハジキを生じる。このシロキサン骨格のメチル基を炭素数が2以上の置換基で置換すると置換した割合に従って消泡効果が減少するがハジキも少なくなる。そのような置換の効果が最も大きいのはポリオキシアルキレン基であり、次いで炭素数が2以上のアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基などである。シロキサン骨格の置換基の一部にメチル基が残って、シロキサン骨格の置換基がメチル基であるジメチルポリシロキサンセグメントとシロキサン骨格のメチル基を炭素数が2以上の置換基で置換した変性ポリシロキサンセグメントが共存すると、消泡効果を発揮し且つハジキを抑制する上で好適である。

#### 【0040】

本発明のシリコン消泡剤は、その成分中に、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の基を持ったシリコン成分を含有するものであり、したがって、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部が炭素数が2以上の基であるシリコン成分とシロキサン骨格の側鎖がメチル基からなるシリコン成分との混合物であっても構わない。更に、通常のシリコン消泡剤に添加される微細なシリカなどの充填材や乳化剤などを含有するものであっても構わない。

すなわち、本発明のシリコーン消泡剤は、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の基を持ったシリコーン成分を含有するシリコーンからなるオイル型消泡剤、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の基を持ったシリコーン成分を含有するシリコーンにシリカなどの充填材を添加したコンパウンド型消泡剤、更に乳化剤を添加した自己乳化コンパウンド型消泡剤などがいずれも好適に用いられる。

#### 【0041】

本発明のシリコーン消泡剤は、ジメチルポリシロキサンとシリカとのコンパウンドに、乳化剤としてシロキサン骨格の置換基の一部としてポリオキシアルキレン基を持ったポリオキシアルキレン変性シリコーンを加えたものが消泡効果が高く且つハジキが効果的に抑制できるので特に好ましい。前述のとおりジメチルポリシロキサンはポリイミドシロキサン組成物に対して極めて優れた消泡効果を有し、一方ポリオキシアルキレン変性シリコーンはジメチルポリシロキサンに対して親和性を有するのみならず異方性導電フィルムなどを構成する有機物に対しても親和性があるため、ジメチルポリシロキサンによって生じるハジキを抑制すると考えられる。

#### 【0042】

本発明のシリコーン消泡剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、信越化学工業株式会社製のKS531（ジメチルポリシロキサンとシリカとのコンパウンドに、置換基の10%程度がポリオキシアルキレン基で90%程度がメチル基からなるポリシロキサンを乳化剤として含有した自己乳化コンパウンド型シリコーン消泡剤）、ダウ・コーニング製のDC-75（置換基の実質的に100%が炭素数が10以上のアルキル基とアラルキル基であるポリシロキサンとシリカとからなるコンパウンド型シリコーン消泡剤）などを好適に挙げることができる。

#### 【0043】

本発明の絶縁膜用組成物は、前記シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の置換基を持ったシリコーン成分を含有してなるシリコーン消泡剤を含有することによって、好ましくは、ポリイミドシロキサン100重量部に対して0.1～10重量部、特に1～8重量部、更に2～7重量部が混入することによって、溶液組成物として泡抜け性が良好（本発明の測定方法で泡抜け時間が好ましくは400秒以下特に100秒以下）になり、且つ基材に塗布後加熱処理して得られた硬化絶縁膜の周辺部で接着不良の原因になるハジキが抑制（本発明の測定方法でハジキ距離が好ましくは100 $\mu$ m以下特に30 $\mu$ m以下）される。0.1重量部未満では消泡効果が得難くなるし、10重量部を越えると、硬化絶縁膜を形成したときの硬化絶縁膜の周辺部のハジキが抑制され難くなる。

#### 【0044】

更に、本発明の絶縁膜用組成物においては、微細な無機フィラーを含有することが好ましい。微細な無機フィラーとしては、平均粒子径が0.001～15 $\mu$ m、特に0.005～10 $\mu$ mのものが好ましい。この範囲外のものを使用すると得られる硬化絶縁膜が屈曲したときに亀裂が発生したり、折り曲げ部が白化したりするので好ましくない。微細なフィラーとしては、例えば微粉状シリカであるアエロジル、タルク、マイカ、硫酸バリウムなどの微細無機フィラーを好適に挙げることができる。本発明においては、微細な無機フィラーとしてアエロジルとタルク、マイカ及び硫酸バリウムのうちの少なくとも一つからなる組合せ、特にアエロジルとタルクと硫酸バリウムとからなる組合せが好適に用いられる。

これらの微細なフィラーはスクリーン印刷などによって塗膜を形成する時の粘度特性を良好に調整し、スズメッキ時のスズ潜り（銅箔と絶縁膜との隙間にスズが侵入する現象、銅箔がえぐれて孔蝕となることもある）を好適に抑制するために用いられるものである。しかし、このような微細なフィラーを加えると、溶液組成物は高粘度になり易く特にチクソトロピー性が高くなるから、必然的に泡抜き性が低下し、溶液組成物を製造する工程やスクリーン印刷などによって塗膜を形成する工程において著しく作業性が低下する。本発



明のポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物においては、前記の微細な無機フィラーを含有してスクリーン印刷などによって塗膜を形成する時の粘度特性を良好に調整でき且つスズメッキ時のスズ潜りを抑制できるのみならず、泡抜き性が良好であるために溶液組成物を製造する工程やスクリーン印刷などによって塗膜を形成する工程における作業性が著しく良好であって且つ加熱処理して得られた硬化絶縁膜の周辺部のハジキを抑制できるものである。

#### 【0045】

微細な無機フィラーの使用量は、ポリイミドシロキサン100重量部に対して、合計で20～150重量部、特に40～125重量部が好適である。使用量が前記範囲より少ないと、印刷性やスズメッキ時のスズ潜りや銅箔変色性を改良できないし、使用量が前記範囲よりも多すぎると塗膜の折り曲げによりクラックが発生するなどの問題が生じ易くなるので前記範囲が好適である。

#### 【0046】

更に、本発明の絶縁膜用組成物には、ブロック多価イソシアネートのブロック化剤を一定の温度以上で解離する解離触媒や、エポキシ基及び／又はイソシアネート基がポリイミドシロキサンの極性基を含む基との硬化反応を促進する硬化促進触媒からなる硬化触媒を含有することが好ましい。

ブロック多価イソシアネートの解離触媒としては、例えばジブチル錫ジラウレートなどや3級アミン類が例示できる。解離触媒の量はブロック多価イソシアネート100重量部に対して0.01～25重量部程度特に0.1～15重量部程度が好ましい。

また、硬化促進触媒としては、2-メチル-4-メチルイミダゾールなどのイミダゾール類や3級アミン類が例示できる。硬化促進触媒の量は、ブロック多価イソシアネート100重量部に対して0.01～25重量部程度特に0.1～15重量部程度が好ましい。

#### 【0047】

本発明の絶縁膜用組成物がエポキシ化合物とブロック多価イソシアネートとを含有する場合には、解離触媒と硬化促進触媒との両方の作用を発揮することができる3級アミンを硬化触媒として含有させることが特に好ましい。

前記3級アミンとしては、例えば1, 8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセン(DBUと略記することもある。以下同様)、N, N-ジメチルベンジルアミン、N, N, N', N'-テトラメチルヘキサンジアミン、トリエチレンジアミン(TEDA)、2-ジメチルアミノメチルフェノール(DMP-10)、2, 4, 6-トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール(DMP-30)、ジモルホリノジエチルエーテル(DMDEE)、1, 4-ジメチルピペラジン、シクロヘキシルジメチルアミンなどを挙げることができる。

特に、1, 8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセン(DBU)、ジメチルベンジルアミン、N, N, N', N'-テトラメチルヘキサンジアミンは、ブロックイソシアネートからブロック化剤を適当な温度において解離し、且つ、ポリイミドシロキサンとエポキシ化合物及び多価イソシアネート化合物との架橋反応を適当な速度に促進することができるので、本発明の絶縁膜用組成物がエポキシ化合物とブロック多価イソシアネートの両方を含有する場合には極めて好適に使用することができる。

#### 【0048】

3級アミンの使用量は、イソシアネート基及びエポキシ基との反応性を有する基を有し且つポリシロキサン骨格を含有してなる樹脂100重量部に対して、0.5～20重量部、好ましくは1～10重量部である。使用量が前記範囲よりも多すぎると、耐溶剤性や電氣的性質が悪くなり、少なすぎると低温での硬化に長時間を要するので前記範囲が好ましい。

#### 【0049】

本発明の絶縁膜用組成物を構成する有機溶媒としては、ポリイミドシロキサンを調製するときの反応に使用した有機溶媒をそのまま使用することができるが、好適には、含窒素系溶媒、例えばN, N-ジメチルアセトアミド、N, N-ジエチルアセトアミド、N, N

ージメチルホルムアミド、N, N-ジエチルホルムアミド、N-メチル-2-ピロリドン、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、N-メチルカプロラクタムなど、含硫黄原子溶媒、例えばジメチルスルホキシド、ジエチルスルホキシド、ジメチルスルホン、ジエチルスルホン、ヘキサメチルスルホルアミドなど、含酸素溶媒、例えばフェノール系溶媒、例えばクレゾール、フェノール、キシレノールなど、ジグライム系溶媒例えばジエチレングリコールジメチルエーテル（ジグライム）、トリエチレングリコールジメチルエーテル（トリグライム）、テトラグライムなど、アセトン、アセトフェノン、プロピオフェノン、エチレングリコール、ジオキサン、テトラヒドロフランなどを挙げることができる。特に、N-メチル-2-ピロリドン、N, N-ジメチルスルホキシド、N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジエチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、N, N-ジエチルアセトアミド、γ-ブチロラクトン、トリエチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテルなどを使用することができ、特にジエチレングリコールジメチルエーテル（ジグライム）、トリエチレングリコールジメチルエーテル（トリグライム）、テトラグライムなどのジグライム系（類）溶媒を好適に使用することができる。

#### 【0050】

さらに、本発明の絶縁膜用組成物においては、有機着色顔料、無機着色顔料を所定量、例えばポリイミドシロキサン100重量部に対して、0.1～100重量部程度使用することができる。

#### 【0051】

本発明の絶縁膜用組成物は、ポリイミドシロキサン、エポキシ化合物及び／又は多価イソシアネート化合物、消泡剤、微細なフィラーおよび有機溶媒などの所定量を均一に、攪拌・混合することによって容易に得ることができる。混合する際に有機溶媒中で混合して溶液組成物にすることができる。有機溶媒に混合させて溶液組成物にするにあたっては、ポリイミドシロキサンの重合溶液をそのままでも、又その重合溶液を適当な有機溶媒で希釈したものを使用してもよい。有機溶媒としては、前記ポリイミドシロキサンを得る際に使用できる有機極性溶媒を挙げることができるが、沸点140℃以上で210℃以下のものを使用することが好ましい。特に沸点180℃以上、特に200℃以上である有機溶媒（例えばトリグライムなど）を使用すると、溶媒の蒸発による散逸が極めて減少するので、又その溶液組成物を使用するとスクリーン印刷などによって印刷をしやすくなる。有機溶媒は、ポリイミドシロキサン100重量部に対して60～200重量部程度使用する。

#### 【0052】

本発明の絶縁膜用組成物は、特に限定するものではないが、室温（25℃）での溶液粘度が50～10000ポイズ特に100～1000ポイズ更に100～600ポイズであることがスクリーン印刷などの作業性や溶液物性や得られる硬化絶縁膜の特性上などから適当である。

#### 【0053】

本発明の絶縁膜用組成物は、以上説明したとおりのものであり、フレキシブル配線基板などの基材上にスクリーン印刷などの方法で良好に塗布でき、比較的低温で加熱処理することによって硬化絶縁膜を形成することができ、且つ得られた硬化絶縁膜は基材との密着性が優れ、ソリが発生し難く、耐熱性、耐溶剤性、耐薬品性（スズ潜りが小さい）、耐屈曲性、電気特性が優れるのものであり、特に溶液組成物として泡抜け性が良好（本発明の測定方法で泡抜け時間が好ましくは400秒以下特に100秒以下）であるからスクリーン印刷を用いた塗布などによって硬化絶縁膜を形成する際の作業性を著しく改善することができ且つ前記溶液組成物を基材に塗布後加熱処理して得られた硬化絶縁膜の周辺部で接着不良の原因になるハジキが抑制されて（本発明の測定方法でハジキ距離が好ましくは100μm以下特に30μm以下）異方性導電フィルム又は異方性導電ペーストによっても信頼性が高い電氣的接合部を得ることができる。

#### 【0054】

次に本発明の配線基板の実装方法について説明する。本発明の配線基板の実装方法は、

(1) 表面に電気回路となる配線が形成された絶縁基板上に配線を部分的に覆うように硬化絶縁膜を形成する工程、次いで(2) 硬化絶縁膜で覆われていない配線部に異方性導電フィルム(ACF)又は異方性導電ペースト(ACP)によって電気的接合部を形成する工程を含んでなる配線基板の実装方法において、特定の消泡剤を含有したポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物を用いて前記硬化絶縁膜を形成することを特徴とするものである。したがって、本発明の実装方法においては、前記特徴以外は、従来周知の配線基板の実装方法に基づくものであり、特に限定するものではない。

#### 【0055】

図1は、特許文献3で示されたような、インナーリード部がチップ部品に接合され、アウターリード部がACF又はACPによって例えば液晶装置の電極と接合されて実装された配線基板の実施態様の一例を示す概略の断面図である。

このような実施形態の場合において、本発明の配線基板の実装方法は、大略次の手順によっておこなわれる。

- 1) 表面に電気回路パターンとなる銅箔の配線2が形成されたポリイミドフィルムの絶縁基板1からなる配線基板を形成する。必要に応じて配線の表面はスズメッキされる。
- 2) 前記配線基板の表面の所定部分に、絶縁膜用溶液組成物をスクリーン印刷によって塗布し、得られた塗膜を50℃～210℃にて加熱処理して硬化絶縁膜3を形成する。この加熱処理は通常は160℃程度の温度であるが、既にスズメッキされた場合は120℃程度の比較的低い温度で加熱処理される。
- 3) 前記硬化絶縁膜で覆われていない配線の表面にスズメッキ層4を形成する。既にスズメッキされた場合はこの工程が省略される場合もある。
- 4) ICチップ部品5を、硬化絶縁膜で覆われていない配線部(インナーリード部)に金バンプ6などによって電気的に接合する。
- 5) ポリイミドフィルムの絶縁基板1とチップ部品5の隙間にエポキシ樹脂などの硬化性樹脂からなるアンダーフィル材7を注入し、通常150℃～160℃程度の温度で加熱処理して硬化させる。
- 6) 液晶パネルの基板10の電極9を、ACF又はACP8を用いて、配線基板の硬化絶縁膜で覆われていない配線部(アウターリード部)に熱圧着して接合する。

#### 【0056】

本発明の配線基板の実装方法は、前記手順2)の絶縁膜用溶液組成物として、(a)芳香族テトラカルボン酸成分と、ジアミノポリシロキサン及び極性基を有する芳香族ジアミンを含んでなるジアミン成分とから得られる有機溶剤可溶性ポリイミドシロキサン100重量部、(b)エポキシ化合物及び／又はブロック多価イソシアネート化合物1～50重量部、(c)シロキサン骨格の側鎖の少なくとも一部がメチル基以外の基であるシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤0.1～5重量部、および(d)有機溶媒を含有してなるポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物を用いることを特徴としている。

#### 【0057】

もし、前記消泡剤がシリコン消泡剤以外の消泡剤の場合には、ポリイミドシロキサン絶縁膜用溶液組成物の泡抜け性を良好に改善することが難しい。また、前記消泡剤がシロキサン骨格の置換基がメチル基であるジメチルポリシロキサン(ジメチルシリコンオイル)の場合には、スクリーン印刷した塗膜の泡抜け性が良好である(短時間で泡抜けする)ため、前記手順2)の作業性が著しく良好になる。しかしながら、前記手順6)で形成される液晶パネル基板10の電極9と配線基板の硬化絶縁膜で覆われていない配線部との接合は接着力が低くなるので電気的接合の信頼性が低くなる。一方、前記消泡剤として、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の基を持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤を使用する本発明の場合には、スクリーン印刷した塗膜の泡抜け性が良好であるため、前記手順2)の作業性が著しく良好になり、且つ前記手順6)で形成される液晶パネル基板10の電極9と配線基板の硬化絶縁膜で覆われていない配線部との接合は十分な接着力を有するから信頼性が高い電気的接合となる。

#### 【0058】

本発明において泡抜け性は、スクリーンマスク（SUS#180、乳剤厚 $15\mu\text{m}$ 、メッシュ厚 $101\mu\text{m}$ ）を用いて $1\text{cm}\times 1\text{cm}$ 枠をスキージ（硬度：70、材質：シリコンゴム）にてポリイミドフィルム（ユープレックス25S）上に手塗り印刷し、10倍光学顕微鏡にて透過光下に観察を行い、全ての泡が消滅するまでの時間を測定した。測定は3回を行いその平均値を泡抜け時間とした。

#### 【0059】

本発明においてハジキ評価用サンプルはスクリーンマスク（SUS#180、乳剤厚 $15\mu\text{m}$ 、メッシュ厚 $101\mu\text{m}$ ）とスキージ（硬度：70、材質：シリコンゴム）とを用いて、銅箔（福田金属箔粉工業社製CF-T8の鏡面）上にポリイミドシロキサン溶液組成物を塗布し次いで $120^{\circ}\text{C}$ （もしくは $160^{\circ}\text{C}$ ）の温度で1時間加熱処理して硬化後、スズメッキ処理し、その後 $150^{\circ}\text{C}$ の温度で2時間熱処理してハジキ評価用サンプルを作製した。

ハジキ評価は和光純薬工業製のぬれ張力試験用混合液No. 35.0を用い、スポイトにて硬化絶縁膜際から $1\text{cm}$ 付近に $0.1\text{ml}$ 垂らし、スポイトの先でぬれ張力試験用混合液を硬化絶縁膜際に近づけて、硬化絶縁膜の際を挟んで硬化絶縁膜表面から銅箔表面をぬらす。その後で、硬化絶縁膜の際からぬれ張力試験用混合液がはじかれた銅箔表面の距離を測定した。はじかれた距離が大きいほどハジキ度合が大きい。

なお、このハジキ評価用サンプルは、前記配線基板の実装方法の手順2）、3）及び5）の履歴を経た後のハジキを評価するため、前記2）、3）、5）の配線基板の実装方法の手順に準拠した条件で作成した。

#### 【実施例】

##### 【0060】

以下、実施例及び比較例を示して本発明を更に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

##### 【0061】

以下の各例で用いた材料について説明する。

##### 〔エポキシ化合物〕

エピコート828：ジャパンエポキシレジン社製、エポキシ樹脂、エポキシ当量：190

エピコート157S70：ジャパンエポキシレジン社製、エポキシ樹脂、エポキシ当量：210

エピコート1007：ジャパンエポキシレジン社製、エポキシ樹脂、エポキシ当量：2000

エピコート1004：ジャパンエポキシレジン社製、エポキシ樹脂、エポキシ当量：900

エピコート807：ジャパンエポキシレジン社製、エポキシ樹脂、エポキシ当量：170

##### 〔多価イソシアネート化合物〕

B-882N：タケネートB-882N、三井武田ケミカル社製、1,6-ヘキサメチレンジイソシアネートブロック化体、ブロック化剤：メチルエチルケトオキシム

D-550：バーノックD-550、大日本インキ化学工業社製、1,6-ヘキサメチレンジイソシアネートブロック化体、ブロック化剤：メチルエチルケトオキシム

MF-K60X：デュラネートMF-K60X、旭化成社製、1,6-ヘキサメチレンジイソシアネートブロック化体、ブロック化剤：活性メチレン

D-500：バーノックD-500、大日本インキ化学工業社製、トリレンジイソシアネートブロック化体、ブロック化剤：メチルエチルケトオキシム

##### 〔消泡剤〕

KS531：信越化学工業社製、シリコン消泡剤（ジメチルポリシロキサンとシリカとのコンパウンドに、シロキサン骨格の置換基の10%程度がポリオキシアルキレン基で90%程度がメチル基からなるポリシロキサンを乳化剤として含有した自己乳化コンパウンド型シリコン消泡剤）

DC-75：ダウコーニング・アジア社製、シリコン消泡剤（シロキサン骨格の置換

基の実質的に100%が炭素数が10以上のアルキル基とアラルキル基であるポリシロキサンとシリカとからなるコンパウンド型シリコーン消泡剤)

ノプロンXZ: サンノプロ社製、金属石鹼消泡剤(脂肪酸金属塩)

フロレンAC-326F: 共栄社化学製、アクリルビニルエーテル消泡剤

DB-100: ダウコーニング・アジア社製、シリコーン消泡剤(シロキサン骨格の置換基が全てメチル基からなるジメチルポリシロキサンからなるコンパウンド型シリコーン消泡剤)

[硬化触媒]

2E4MZ: 四国化成工業社製、2-エチル-4-メチルイミダゾール

DBU: アルドリッチ社製、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセン

[無機フィラー]

アエロジル#50: 日本アエロジル社製、平均粒径30nm

アエロジル#130: 日本アエロジル社製、平均粒径16nm

タルクP-3: 日本タルク社製タルク、マイクロエースP-3、平均粒径5.1 $\mu$ m

硫酸バリウムB-30: 堺化学工業社製硫酸バリウム、平均粒径0.3 $\mu$ m

【0062】

[参考例1]

ポリイミドシロキサン溶液の製造:

容量500mlのガラス製フラスコに、2, 3, 3', 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物47.1g(0.16モル)、溶媒のメチルトリグリム(以下、TGと略記することもある)100gを仕込み、窒素雰囲気下、180℃で加熱攪拌した。 $\alpha$ ,  $\omega$ -ビス(3-アミノプロピル)ポリジメチルシロキサン(アミノ当量460)125.1g(0.136モル)、TG40gを加え、180℃で60分加熱攪拌した。さらにこの反応溶液に3, 3'-カルボキシ-4, 4'-ジアミノジフェニルメタン(MBAA)6.9g(0.024モル)及びTG39gを加え、180℃で10時間加熱攪拌した後、濾過を行った。得られたポリイミドシロキサン反応溶液は、ポリマー固形分濃度51重量%、 $\eta_{inh}$ が0.20の溶液であった。イミド化率は実質的に100%であった。

【0063】

[実施例1]

ガラス製容器に、参考例1で得たポリイミドシロキサン溶液を40.0g、エポキシ樹脂のエピコート828を3.7g(ポリイミドシロキサン溶液100重量部に対して9.25重量部、以下同様)、硬化触媒の2E4MZを0.1g(0.25重量部)と、シリコーン系消泡剤のKS531を0.9g(2.25重量部)、無機充填材のアエロジル50を3.9g(9.75重量部)と、タルクのマイクロエースP-3を4.8g(12.0重量部)と、硫酸バリウムB-30を14.5g(36.25重量部)とを仕込み、25℃で2時間攪拌して均一に混合したポリイミドシロキサン組成物を得た。

このポリイミドシロキサン組成物の泡抜け性とハジキ性の測定結果を表2に示す。

【0064】

[実施例2~19]

実施例1と同様にして表1及び表2に示した組成からなるポリイミドシロキサン組成物を得た。これらのポリイミドシロキサン組成物の泡抜け性とハジキ性の測定結果を表3に示す。

【0065】

[比較例1]

消泡剤を添加しないこと以外は実施例4と同様にしてポリイミドシロキサン組成物を得た。このポリイミドシロキサン組成物の泡抜け性とハジキ性の測定結果を表3に示す。

【0066】

[比較例2]

消泡剤として金属石鹼系消泡剤であるサンノプロ製ノプロンXZを用いたこと以外は実施例4と同様にしてポリイミドシロキサン組成物を得た。このポリイミドシロキサン組成

物の泡抜け性とハジキ性の測定結果を表 3 に示す。

【 0 0 6 7 】

〔比較例 3〕

消泡剤としてアクリルビニルエーテル消泡剤である共栄社化学製フロレーン AC-326F を用いたこと以外は実施例 4 と同様にしてポリイミドシロキサン組成物を得た。このポリイミドシロキサン組成物の泡抜け性とハジキ性の測定結果を表 3 に示す。

【 0 0 6 8 】

〔比較例 4〕

消泡剤としてシロキサン骨格の置換基が全てメチル基からなるジメチルポリシロキサンからなるコンパウンド型シリコーン消泡剤であるダウコーニング・アジア社製 DB-100 を用いたこと以外は実施例 4 と同様にしてポリイミドシロキサン組成物を得た。このポリイミドシロキサン組成物の泡抜け性とハジキ性の測定結果を表 3 に示す。

【 0 0 6 9 】

【表 1】

表 1. 組成

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10	実施例 11
ポリイソシロキサン溶液	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
【エポキシ化合物】												
ICコート828	9.25	5.25	5.25	-	-	-	-	-	9.25	-	-	0.5
ICコート157S70	-	-	-	9.25	-	-	-	-	-	-	-	-
ICコート1007	-	-	-	-	5.25	4	-	4	-	-	-	-
ICコート1004	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
ICコート807	-	-	-	-	-	9.25	-	-	-	5.25	5.25	-
【多価イソシアネート化合物】												
B-882N	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	5
D-550	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
MF-K60X	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
D-500	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
【消泡剤】												
KS531	2.25	2.25	1.25	2.25	2.25	2.25	1.25	-	-	2	2	2
DC-75	-	-	-	-	-	-	-	2.25	-	-	-	-
7FONXZ	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
7DL-3AC-326F	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
DB-100	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
【硬化触媒】												
2E4MZ	0.2	0.2	0.2	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.2	0.2	0.2	0.1
DBU	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.4
【無機フィラー】												
7Eインジ#50	9.75	9.75	9.75	9.75	9.75	9.75	9.75	9.75	9.75	9.75	2	2
7Eインジ#130	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	8.25	8.25
タルクP-3	12	12	12	12	12	12	12	12	12	22.75	22.75	22.75
硫酸バリウムAB-30	36.25	36.25	36.25	36.25	36.25	36.25	36.25	36.25	36.25	11.25	11.25	11.25

単位: ポリイミドシロキサン溶液100重量部に対する重量部

【0070】

【表 2】

表 2. 組成

	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16	実施例17	実施例18	実施例19	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
ポリイミドキサン溶液	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
【エポキシ化合物】	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
IEコート828	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
IEコート157S70	1	-	-	0.5	-	1	2	1	9.25	9.25	9.25	9.25
IEコート1007	-	-	0.5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
IEコート1004	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
IEコート807	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
【多価イソシアネート化合物】	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
B-882N	10	10	5	5	-	10	-	-	-	-	-	-
D-550	-	-	-	-	5	-	-	-	-	-	-	-
MF-K60X	-	-	-	-	-	-	10	-	-	-	-	-
D-500	-	-	-	-	-	-	-	5	-	-	-	-
【消泡剤】	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
KS531	2	2	2	1	2	-	2	2	-	-	-	-
DC-75	-	-	-	-	-	2	-	-	-	-	-	-
770NXZ	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2.25	-	-
770L-3AC-326F	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2.25	-
DB-100	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2.25
【硬化触媒】	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2E4MZ	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.25	0.25	0.25	0.25
DBU	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	-	-	-	-
【無機フィラー】	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
アインシム#50	2	2	2	2	2	2	2	2	9.75	9.75	9.75	9.75
アインシム#130	8.25	8.25	8.25	8.25	8.25	8.25	8.25	8.25	-	-	-	-
タルクP-3	22.75	22.75	22.75	22.75	22.75	22.75	22.75	22.75	12	12	12	12
硫酸バリウムAB-30	11.25	11.25	11.25	11.25	11.25	11.25	11.25	11.25	36.25	36.25	36.25	36.25

単位: ポリイミドキサン溶液100重量部に対する重量部

【00071】



【表 3】

表3. 評価結果

	ハジキ距離(μm)	泡抜け時間(sec)
実施例1	0	38
実施例2	0	43
実施例3	0	74
実施例4	0	47
実施例5	0	53
実施例6	0	51
実施例7	0	85
実施例8	0	300
実施例9	0	48
実施例10	0	55
実施例11	0	57
実施例12	0	47
実施例13	0	53
実施例14	0	52
実施例15	0	92
実施例16	0	45
実施例17	0	278
実施例18	0	48
実施例19	0	62
比較例1	0	>600
比較例2	0	>600
比較例3	0	>600
比較例4	500	25

## 【産業上の利用可能性】

## 【0072】

本発明は、表面に電気回路となる配線が形成された絶縁基板上に配線を部分的に覆うように絶縁膜を形成する工程、及び絶縁膜で覆われていない配線部に異方性導電フィルム又は異方性導電ペーストによって電氣的接合部を形成する工程を含んでなる配線基板の実装方法において、泡抜け性が良好で作業性よく前記絶縁膜を形成し且つ前記絶縁膜の周辺部のハジキを抑制する配線基板の実装方法を提供することができる。さらに、本発明は、有機溶剤可溶性ポリイミドシロキサンとエポキシ化合物及び／又はブロックされた多価イソシアネート化合物とを含有してなる絶縁膜用の溶液組成物であって、溶液組成物として泡抜け性が良好であり（好ましくは400秒以下特に100秒以下）且つ基材に塗布後加熱処理して得られた硬化絶縁膜の周辺部で接着不良の原因になるハジキが抑制される（ハジキ距離が好ましくは100μm以下特に30μm以下）絶縁膜用ポリイミドシロキサン溶液組成物及びその硬化絶縁膜を提供することができる。

## 【図面の簡単な説明】


## 【0073】

【図1】 インナーリード部がチップ部品に接合され、アウターリード部がACF又はACPによって例えば液晶装置の電極と接合されて実装された配線基板の実施態様の一例を示す概略の断面図である。

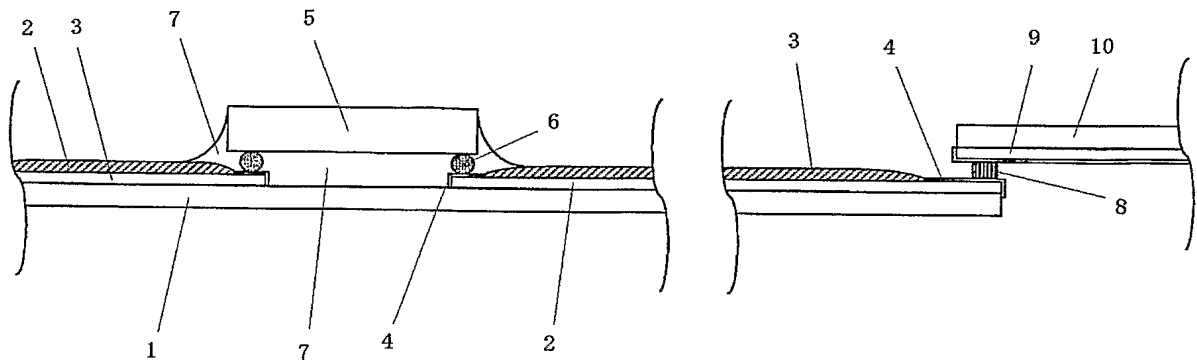
## 【符号の説明】

## 【0074】

- 1：ポリイミドフィルムからなる絶縁基板
- 2：銅箔で形成された配線

- 
- 3 : 硬化絶縁膜 (保護膜)
  - 4 : スズメッキ
  - 5 : I C チップ部品
  - 6 : 金バンプ
  - 7 : アンダーフィル
  - 8 : 異方性導電フィルム又は異方性導電ペースト
  - 9 : 液晶パネル基板の電極
  - 1 0 : 液晶パネル基板

【書類名】 図面  
【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 絶縁基板上の配線を部分的に覆うように絶縁膜を形成し次いで配線部に異方性導電フィルム等によって電氣的接合部を形成する工程からなる実装方法において、溶液組成物として泡抜け性が良好で且つ硬化絶縁膜の周辺部でハジキが抑制されるポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物を用いて絶縁膜を形成する配線基板の実装方法を提供する。

【解決手段】 有機溶剤可溶性ポリイミドシロキサン100重量部、エポキシ化合物及び／又はブロック多価イソシアネート化合物1～50重量部、シロキサン骨格の置換基の少なくとも一部として炭素数が2以上の基を持ったシリコン成分を含有してなるシリコン消泡剤0.1～10重量部、および有機溶媒を含有し、溶液組成物として泡抜け性が良好で且つ硬化絶縁膜の周辺部でハジキが抑制されるポリイミドシロキサン絶縁膜用組成物を用いて絶縁膜を形成する配線基板の実装方法。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 4 - 0 4 4 5 3 0
受付番号	5 0 4 0 0 2 7 7 2 9 3
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 6 年 2 月 2 3 日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成16年 2月20日
-------	-------------

特願 2 0 0 4 - 0 4 4 5 3 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 0 2 0 6 ]

1. 変更年月日

2 0 0 1 年 1 月 4 日

[変更理由]

住所変更

住 所

山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 9 6

氏 名

宇部興産株式会社